

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

Rec'd PCT/PTO 23 FEB 2005

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 01 OCT 2003	
WIPO	PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 102 38 811.3

**Anmeldetag:** 23. August 2002

**Anmelder/Inhaber:** Innovationsagentur GmbH, Wien/AT;  
Andreas Voigt, Wien/AT; Franz Winter,  
Baden/AT; Martin Kozek, Gaaden/AT.

**Bezeichnung:** Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten  
unter Verwendung eines neuartigen  
Wirbelschicht-Reaktorkonzeptes

**IPC:** C 07 C, B 01 J

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 20. August 2003  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Hintermeier

Best Available Copy

---

Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten unter Verwendung  
eines neuartigen Wirbelschicht-Reaktorkonzeptes

---

5

Die Erfindung betrifft ein neues Verfahren zur Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten unter Verwendung eines speziellen Wirbelschicht-Reaktorkonzeptes.

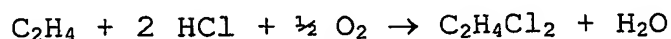
- 10 Die Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten mittels Sauerstoff und Chlorwasserstoff ist ein an sich bekanntes Verfahren, das beispielsweise in Ullmann's Encyclopaedia of Industrial Chemistry, Wiley-VCH Verlag GmbH, Deutschland, 2002, Kapitel 2.3 und S. Sai Prasad, B. S. Prasad, M. S. Ananth,
- 15 *Parameter Estimation in Fixed-Bed Reactor Operating under Unsteady Stat: Oxychlorination of Ethylene*, Ind. Eng. Chem. Res., Band 40, Seiten 5487-5495, Indian Institute of Chemical Technology, 2001, dem US-Patent 3,148,222 und in Beyer, Walter, Lehrbuch der Organischen Chemie, S. Hirzel Verlag Stuttgart beschrieben ist.

Diese Verfahren werden unter heterogener Katalyse mit einem Kupfersalz-Katalysator durchgeführt (siehe z.B. S. Wachi, Yousuke Asai, *Kinetics of 1,2-Dichlorethane Formation from Ethylene an Cupric Chloride*, Ind. Eng. Chem. Res., Band 33,

25 Seiten 259-264, Japan, 1994).

Von großtechnischer Bedeutung ist insbesondere die Oxichlorierung von Ethylen. Diese ist Gegenstand der DE 43 03 086 und der JP 59016835. Dabei wird 1,2-Dichlorethan (Ethylen-

Von großtechnischer Bedeutung ist insbesondere die Oxichlorierung von Ethylen. Diese ist Gegenstand der DE 43 03 086 und der JP 59016835. Dabei wird 1,2-Dichlorethan (Ethylen-  
dichlorid, EDC) unter Verwendung eines Kupferchloridkatalysa-  
tors erhalten. Hierbei läuft folgende Bruttoreaktion ab.



Die Umsetzung erfolgt in Festbett- oder Wirbelschichtreaktoren typischerweise bei 200°C bis 240°C und erhöhtem Druck.

Die Synthese erfolgt als heterogenkatalysierte Reaktion mit  $\text{CuCl}_2$  als Katalysator. Dieses  $\text{CuCl}_2$  ist mit einem Massenanteil von 3 bis 7% auf einem Trägermaterial (häufig  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) aufgebracht. Die Edukte Ethylen, Sauerstoff (als Luft oder Reinsauerstoff) und Chlorwasserstoff werden dabei dem Reaktor gemeinsam im untersten Bereich desselben zugeführt. Um eine  
Information über die Umsätze der Edukte zu haben, wird ein  
geringer stöchiometrischer Überschuss von Ethylen und Sauerstoff eingestellt. Das Kopfprodukt des Oxichlorierungsreaktors besteht aus 1,2-Dichlorethan und Wasserdampf als Hauptkomponenten und nicht umgesetzten Ethylen, Sauerstoff sowie  $\text{HCl}$ . Bei der direkten Kühlung mit Wasser in der nachgeschalteten Quenche wird Chlorwasserstoff aus dem Gemisch ausgewaschen. Nach anschließender Kondensation von Produkt und Wasser kann das Produkt abgezogen werden. Nicht kondensierbare Gase werden entweder als Kreisgas rückgeführt oder fallen als  
Abgas an. Ein Teil des Kreisgases muss zur Erhaltung des Systemdrucks jedoch immer ausgeschleust werden. Das Produkt enthält noch gelöstes Wasser, welches mittels Destillation entfernt wird.

Bei den im Stand der Technik bekannten Verfahren wird der Reaktor entweder in der so genannten „Kreisgasfahrweise“, wel-

che mit reinem Sauerstoff arbeitet, oder in der so genannten „Luftfahrweise“ betrieben, bei der als Sauerstoffquelle Luft eingesetzt wird.

Bei beiden Verfahren kommt es zur Bildung von Oxidationsnebenprodukten wie  $\text{CO}_2$  und  $\text{CO}$ . Diese Nebenprodukte verschlechtern die Rohstoffausbeuten und verursachen Kosten bei ihrer Entsorgung und belasten die Umwelt in Form von Abgasen. Der Katalysator wird nicht im optimalen Maße ausgenutzt.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten bereitzustellen, bei dem die Menge der bei der Reaktion anfallenden Nebenprodukte verringert, der Verlust von Olefinen bzw. Aromaten und Sauerstoff sowie die Abgasmenge minimiert und die Reinheit des erzeugten Produkts gesteigert wird, so dass sich die Kosten für die Reinigung des Produkts (z.B. durch Destillation) verringern.

Gegenstand der Erfindung ist ein kontinuierliches Verfahren zur Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten, umfassend die Umsetzung von Olefinen und Aromaten als Komponente (a) mit Sauerstoff und Chlorwasserstoff als Komponente (b) in Gegenwart eines festen Kupfersalzkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass man die Komponenten (a) und (b) räumlich voneinander getrennt in Reaktionszonen und Regenerationszonen des Reaktors einspeist, wobei die Reaktionszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in oxidiert Form als am Feststoffaustritt aufweist, und die Regenerationszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in reduzierter Form als am Feststoffaustritt aufweist, und wobei die Komponente (a) in die Reaktionszonen und die Komponente (b) in die Regenerationszonen eingespeist werden.

Die Erfindung wird durch die beigefügten Figuren näher erläutert:

Figur 1 veranschaulicht die vorgenannte Kreisgasfahrweise,  
5 die bei der Oxichlorierung nach dem Stand der Technik angewendet wird.

Figur 2 veranschaulicht die Luftfahrweise.

Figur 3 zeigt schematisch einen Reaktoraufbau für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens, wobei der Reaktor  
10 so genannte Reaktions- und Regenerationszonen aufweist.

Figur 4 zeigt eine Ausführungsform des Reaktors zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit interner Katalysatorzirkulation.

Figur 5 zeigt eine weitere Ausführungsform des Reaktors zur  
15 Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit interner Katalysatorzirkulation.

Figur 6 zeigt eine weitere Ausführungsform des Reaktors zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit interner Katalysatorzirkulation.

20 Figur 7 zeigt Querschnittsformen für den Reaktor gemäß Figuren 4, 5 und 6.

Figur 8 zeigt eine Ausführungsform des Reaktors zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit getrennten Behältern.

25 Figur 9 zeigt ein Nomogramm der Katalysatorumlauftrate.

Figur 10 zeigt den in dem Ausführungsbeispiel verwendeten Reaktoraufbau.

Ein wesentliches Merkmal des erfindungsgemäßen Verfahrens ist die Verwendung eines Reaktors, welcher so genannte Reaktions- und Regenerationszonen aufweist. Die Edukte, d.h. die Olefine und die Aromaten, einerseits und der Sauerstoff und der Chlorwasserstoff andererseits werden dabei zonenspezifisch und somit örtlich voneinander getrennt zugegeben. Damit wird eine höhere Ausnutzung des Katalysators möglich, da bei diesem neuartigen Wirbelschicht-Reaktorkonzept Olefin/Aromat und Sauerstoff nur noch in geringem Umfang in direktem Kontakt miteinander stehen, so dass es zu einem Rückgang der Nebenproduktbildung und einer Erhöhung der Ausbeute des Oxichlorierungsprodukts kommt. Überdies kann das erfindungsgemäße Verfahren bei niedrigeren Temperaturen durchgeführt werden.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung wird unter einer „Reaktionszone“ eine Zone des Reaktors verstanden, die am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in oxidierter Form als am Feststoffaustritt aufweist. Verwendet man beispielsweise Kupferchlorid als Katalysator, so sollte dieser am Feststoffeintritt die Komponenten  $\text{CuCl}_2$ ,  $\text{CuCl}$  und  $\text{CuO}$  in den nachfolgend angegebenen Verhältnissen umfassen:

0,1 bis 0,5 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

und vorzugsweise

0,35 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,02 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0,02 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

Am Feststoffaustritt betragen diese Verhältnisse

0,1 bis 0,2 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,2 bis 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kg Kat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

und vorzugsweise

0,1 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

5 Unter einer „Regenerationszone“ wird eine Zone des Reaktors verstanden, welche am Feststoffeintritt eine niedrigere Konzentration des Katalysators in oxidiert Form als am Feststoffaustritt aufweist. Entsprechend umfasst der Katalysator am Feststoffeintritt:

10 0,1 bis 0,2 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,2 bis 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ;  
0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

und vorzugsweise

0,1 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

und am Feststoffaustritt im Allgemeinen:

15 0,2 bis 0,5 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ;  
0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$

und vorzugsweise

0,4 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,05 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0,05 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$ .

20 Wie bereits erwähnt werden die Edukte räumlich voneinander getrennt in diese Reaktions- bzw. Regenerationszonen eingeleitet.

Dabei werden die Olefine und die Aromaten in die Reaktionszonen und Sauerstoff bzw. Luft und Chlorwasserstoff in die Regenerationszonen eingeleitet.

25

In den Reaktionszonen wird der Kupferkatalysator, welcher Kupfer in seiner zweiwertigen Form ( $\text{Cu}^{2+}$ ) enthält, zu Kupfer(I)-haltigen Formen reduziert. Der reduzierte Katalysator verlässt die Reaktionszone durch Zirkulation und gelangt in  
5 eine Regenerationszone.

In den Regenerationszonen werden Sauerstoff bzw. Luft und Chlorwasserstoff eingeleitet. Dort wird der Katalysator wieder in seine Ausgangsform überführt, d.h. Kupfer(I)-Salze werden zu Kupfer(II)-Salzen oxidiert. Der regenerierte Katalysator verlässt anschließend die Regenerationszone durch Zirkulation und gelangt wieder in eine Reaktionszone.

Als Katalysator kann jeder an sich bekannte und bei Oxichlorierungsverfahren verwendbare Kupfersalz-Katalysator eingesetzt werden. Vorzugsweise verwendet man bei dem erfindungs-  
15 gemäßen Verfahren  $\text{CuCl}_2$  als Katalysator.

Die Katalysatorzirkulationsrate wird bei dem erfindungsgemäßen Verfahren mittels Steuerung der Fluidisierung in den einzelnen Reaktorzonen eingestellt. Im Allgemeinen beträgt die Katalysatorzirkulationsrate 1 bis 150 Tonnen/Stunde Katalysator pro Tonne/Stunde Produkt (z.B. 1,2-Dichlorethan) und vorzugsweise etwa 55 Tonnen/Stunde Katalysator pro Tonne/Stunde Produkt (bei einem  $\text{CuCl}_2$ -Gehalt von 5 Massenprozent im oxidierten Katalysator).

Durch entsprechende Einstellung der Katalysatorzirkulations-  
25 rate wird gewährleistet, dass die gasförmigen Edukte in Zonen eingeleitet werden, in denen das Katalysatorbett angereicherte Reaktionspartner enthält.

Um das Katalysatorbett in Umlauf zu versetzen bedarf es einer treibenden Kraft. Der Katalysatorumlauf wird durch unter-



schiedliche Gasgeschwindigkeiten in den einzelnen Bereichen oder Zwangsförderung (Pumpen) realisiert.

Gasgeschwindigkeitsunterschiede von 0,01 m/s bis 0,1 m/s zwischen Reaktions- und Regenerationsseite können die nötige  
5 Zirkulationsrate bewirken. Die Geometrie der Durchtrittsfläche zwischen den Zonen ist dabei mitbestimmend.

Das Verhältnis der Gasgeschwindigkeiten kann zwischen 1/1,1 und 1/1,3 liegen.

10 Die Asymmetrie in der Fluidisierung wird durch die unterschiedlichen Gasmengen in den Zonenquerschnitten eingestellt.

Entscheidend ist die flächenbezogene Gasbelastung ( $\text{m}^3/\text{s} \cdot \text{m}^2$ ) also die Gasgeschwindigkeit (m/s). Wenn sich der Querschnitt ändert, so ändert sich bei gleich bleibender Gasmenge die Gasgeschwindigkeit.

15 Bei Betrieb der Oxichlorierung mit Kreisgasfahrweise kann auch das Kreisgas als Fluidisierungsgas dienen. Als Kreislaufgas werden die gasförmigen, nicht kondensierbaren Nebenprodukte ( $\text{CO}_2$ , CO), Inertgase ( $\text{N}_2$ , Ar) sowie die nicht umgesetzten Edukte (Ethylen und Sauerstoff) verwendet.

20 Die Katalysatorumlauftrate kann aufgrund der Druckverteilung über die Reaktorbereiche gemessen werden. Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren beträgt die Katalysatorumlauftrate im Allgemeinen

30 bis 140 t/h Katalysatorumlauf pro t/h Produkt (z.B. 1,2-Dichlorethan)  
25

und vorzugsweise

50 t/h Katalysatorumlauf pro t/h Produkt (z.B. 1,2-Dichlorethan; entspricht 100% der Chlorzufuhr aus regeneriertem Katalysator)

Der erreichte Katalysatorumlauf bestimmt die Aufteilung der Edukte auf die Zonen und zwar wie folgt:

Ist kein Katalysatorumlauf vorhanden, so werden die Edukte entsprechend der Stöchiometrie der Reaktion gleichmäßig über den gesamten Querschnitt zugegeben.

Können zum Beispiel nur 50% des zur Chlorierung des eingesetzten Ethylens Chlors über regenerierten Katalysator einer Reaktionszone zugeführt werden (weil die Zirkulationsrate dementsprechend gering ist), so sind 50% der HCl bzw. Sauerstoffmenge dem Reaktionszonen zuzuführen. Damit muss aber auch die halbe Menge des Ethylens in die Regenerationszonen eingeleitet werden.

Kann aufgrund einer ausreichenden Zirkulationsrate das gesamte Chlor (100%) in Form von regeneriertem Katalysator zugeführt werden, so ist eine völlige Trennung der Edukte einzustellen. (=100% des eingesetzten Ethylens strömen den Reaktionszonen zu, 100% des eingesetzten HCl und Sauerstoffs strömen den Regenerationszonen zu).

Der nötige Katalysatorumlauf ergibt sich aus der zuzuführenden Chlormenge, entsprechend der gewünschten Produktionsmenge.

Dies wird in dem Nomogramm gemäß Figur 9 veranschaulicht. Die darin enthaltenen Parameter sind in der nachfolgenden Tabelle dargestellt.

Tabelle:

%CuCl <sub>2</sub> (Massen %)	mol/kgKat (samt Trägermaterial)	Katalysatorumlauf- rate Kat./h EDC	Produktionsmenge	t/h EDC 10	t/h EDC 12	t/h EDC 14	t/h EDC 15	t/h EDC 16
2,00	0,15	135		1349	1618	1888	2023	2158
3,00	0,22	90		899	1079	1259	1349	1438
4,00	0,30	67	Katalysator- Umlaufrate	674	809	944	1011	1079
5,00	0,37	54		539	647	755	809	863
6,00	0,45	45		450	539	629	674	719
7,00	0,52	39		385	462	539	578	616

Da bei dem erfindungsgemäßen Verfahren die Olefine bzw. Aromaten und das Oxidationsmittel Sauerstoff nicht mehr in direktem Kontakt miteinander stehen, ist die Bildung von Oxidationsprodukten wie CO<sub>2</sub> und CO gehemmt. Das erhöht die Umsetzung zum gewünschten Produkt und senkt die Abgasmenge.

Die Betriebstemperaturen sind bei dieser Fahrweise zwangsläufig niedriger und betragen 190°C bis 210°C.

Solche niedrigeren Reaktionstemperaturen werden dadurch ermöglicht, dass den Edukten am Ort ihrer Zugabe der Reaktionspartner (d.h. der Katalysator in der jeweiligen Zusammensetzung) in erhöhter Konzentration für die Reaktion zur Verfügung steht. Dadurch steigt die Selektivität der Reaktion zugunsten einer erhöhten Produktbildung, wie beispielsweise 1,2-Dichlorethan aus Ethylen. Der Trennaufwand (Energieeinsatz) in den nachgeschalteten Reinigungskolonnen wird dadurch gesenkt. Die zu entsorgende (verbrennende) Menge an höher siedenden Nebenprodukten sinkt, was wiederum die Abgasbilanz der ganzen Anlage verbessert.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren sind die Gaszuführungen derart angeordnet, dass Olefin und Sauerstoff/HCl nicht (oder nur in sehr geringem Maße) in Kontakt kommen. Andererseits führt bereits eine nur unvollständige Trennung der Edukte zu

erheblichen Vorteilen gegenüber den im Stand der Technik bekannten Verfahren. Dies bedeutet, dass die Eduktverteilung flexibel eingestellt werden kann. Mithin kann die Aufteilung jedes einzelnen Eduktes auf die Reaktions- bzw. Regenerationsbereiche über einen Bereich von einer gleichmäßigen Verteilung bis hin zu einer völligen Trennung erfolgen.

Gemäß einer Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird dies dadurch erzielt, dass auch in den Reaktionszonen Gasverteiler für Sauerstoff und HCl vorhanden sind.

Entsprechend können auch alternativ oder kumulativ Gasverteiler für das Olefin in den Regenerationszonen vorgesehen werden.

15

Die Strömungsrichtung des Katalysatorbetts in der Reaktionszone ist keinen Beschränkungen unterworfen, das heißt es kann sowohl gegen die Blasenauftiegsrichtung als auch im Sinne der Blasenauftiegsrichtung strömen.

20

Die Erfindung wird durch das nachfolgende Ausführungsbeispiel näher erläutert:

#### Ausführungsbeispiel

Als Reaktor wurde die in die Figur 10 dargestellte Ausführungsform zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit interner Katalysatorzirkulation verwendet.

Die Höhe des Reaktors betrug 0,5 m und sein Durchmesser 0,1 m.

In den Reaktor wurden 3,1 kg Katalysator eingebracht.

5 Anschließend wurden Ethylen und Sauerstoff/HCl in den Reaktor eingespeist, wobei die Trennung der Edukte folgendermaßen realisiert wurde:

10 Als Gasverteilerboden wurde eine poröse Platte („Fritte“), die in der Mitte abgeteilt ist, verwendet. Durch die linke Hälfte wurde Ethylen und Stickstoff eingeleitet. Der Stickstoff dient der Variierung der Fluidisierungs-Asymmetrie, da die Eduktmengen entsprechend ihrer Stöchiometrie eingehalten werden müssen. Durch die rechte Hälfte wurde Sauerstoff und HCl eingeleitet (siehe Figur 10). Dadurch ist die räumliche Trennung realisiert. (Diese Ausführungsform ist auch in der  
15 Großanlage möglich. Diese Konstruktion ist sehr billig und einfach. Sie kann in bestehende Anlagen eingebaut werden, das heißt, es muss nicht zwingend ein neuer Reaktor gekauft werden.)

Der Gesamtgasvolumenstrom durch den Reaktor betrug 0,6 m<sup>3</sup>/h bis 1 m<sup>3</sup>/h bei Gasgeschwindigkeiten im Bereich von 0,02 m/s bis 0,03 m/s. Hierbei wurden zwischen Reaktions- und Regenerationsseite Druckdifferenzen im Bereich von 1 mbar bis 3 mbar gemessen bei einer Katalysatorumlauftrate von 0,04 kg/s.

PATENTANSPRÜCHE

1. Kontinuierliches Verfahren zur Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten, umfassend die Umsetzung von Olefinen und Aromaten als Komponente (a) mit Sauerstoff und Chlorwasserstoff als Komponente (b) in Gegenwart eines festen Kupfersalzkatalysators in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass man die Komponenten (a) und (b) räumlich voneinander getrennt in Reaktionszonen und Regenerationszonen des Reaktors einspeist, wobei die Reaktionszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in oxidiertem Form als am Feststoffaustritt aufweist, und die Regenerationszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in reduzierter Form als am Feststoffaustritt aufweist, und wobei die Komponente (a) in die Reaktionszonen und die Komponente (b) in die Regenerationszonen eingespeist werden.

2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass zusätzlich die Komponente (b) in die Reaktionszone eingespeist wird.

3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass zusätzlich die Komponente (a) in die Regenerationszone eingespeist wird.

4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass man als Katalysator Kupferchlorid verwendet.

5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator am Feststoffeintritt der Reaktionszone 0,1 bis 0,5 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
- 5 6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator 0,35 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,02 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0,02 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator am Feststoffaustritt der Reaktionszone 0,1 bis 0,2 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,2 bis 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
8. Verfahren nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator 0,1 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
- 15 9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator am Feststoffeintritt der Regenerationszone 0,1 bis 0,2 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,2 bis 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
- 20 10. Verfahren nach Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator 0,1 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,3 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
11. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator am Feststoffaustritt 0,2 bis 0,5 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0 bis 0,1 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0 bis 0,1 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.
- 25 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Katalysator 0,4 mol  $\text{CuCl}_2/\text{kgKat}$  ; 0,05 mol  $\text{CuCl}/\text{kgKat}$  und 0,05 mol  $\text{CuO}/\text{kgKat}$  umfasst.

13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Katalysatorzirkulationsrate 1 bis 60 Tonnen/Stunde Katalysator pro Tonne/Stunde Produkt beträgt.

14. Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass  
5 die Katalysatorumlauftrate 55 Tonnen/Stunde Katalysator pro Tonne/Stunde Produkt beträgt.

15. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Unterschied zwischen den Gasgeschwindigkeiten zwischen den Reaktions- und Regenerationszonen 0,01 m/s bis 0,1 m/s beträgt.

16. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Verhältnis der Gasgeschwindigkeiten 1/1,1 bis 1/1,3 beträgt.



### ZUSAMMENFASSUNG

Beschrieben wird ein kontinuierliches Verfahren zur Oxichlorierung von Olefinen und Aromaten, umfassend die Umsetzung von Olefinen und Aromaten als Komponente (a) mit Sauerstoff und Chlorwasserstoff als Komponente (b) in Gegenwart eines festen Kupfersalzkatalysators in einem Reaktor, dass dadurch gekennzeichnet ist, dass man die Komponenten (a) und (b) räumlich voneinander getrennt in Reaktionszonen und Regenerationszonen des Reaktors einspeist, wobei die Reaktionszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in oxidierte Form als am Feststoffaustritt aufweist, und die Regenerationszone am Feststoffeintritt eine höhere Konzentration des Katalysators in reduzierter Form als am Feststoffaustritt aufweist, und wobei die Komponente (a) in die Reaktionszonen und die Komponente (b) in die Regenerationszonen eingespeist werden.

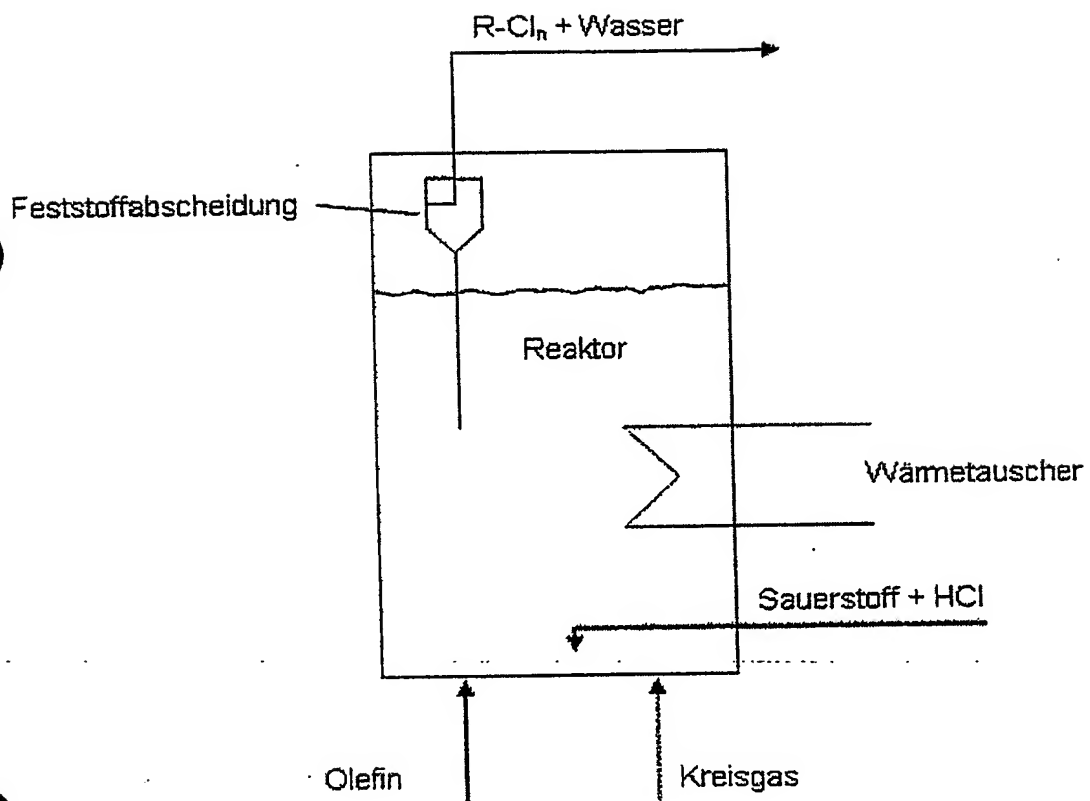
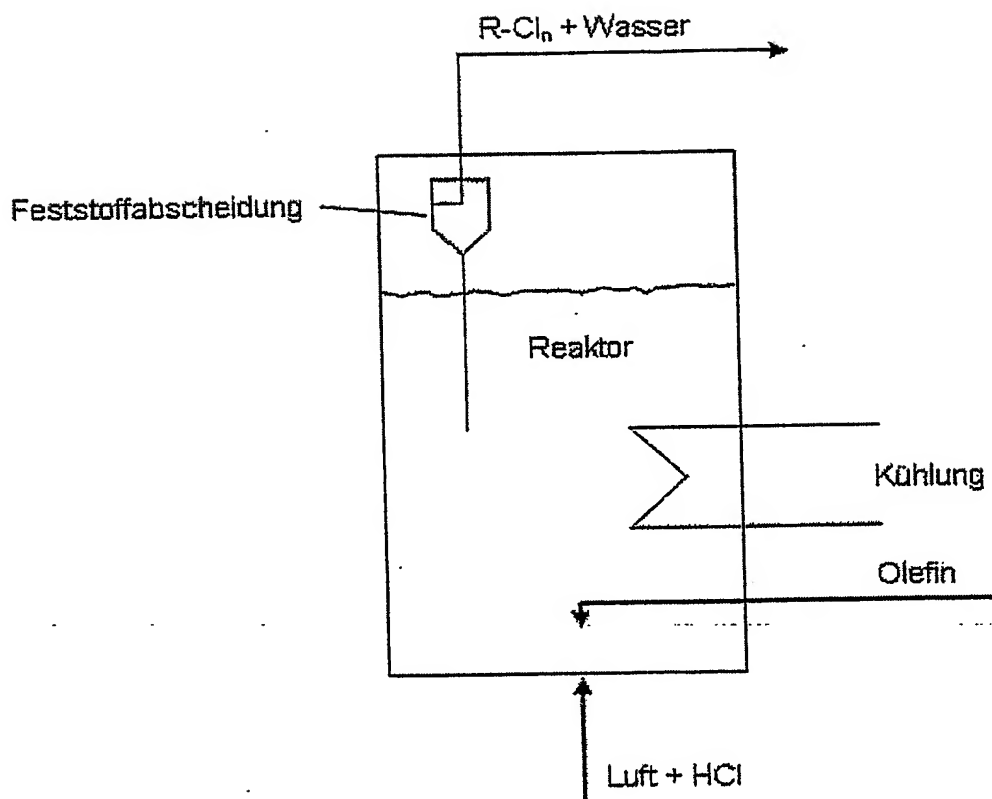
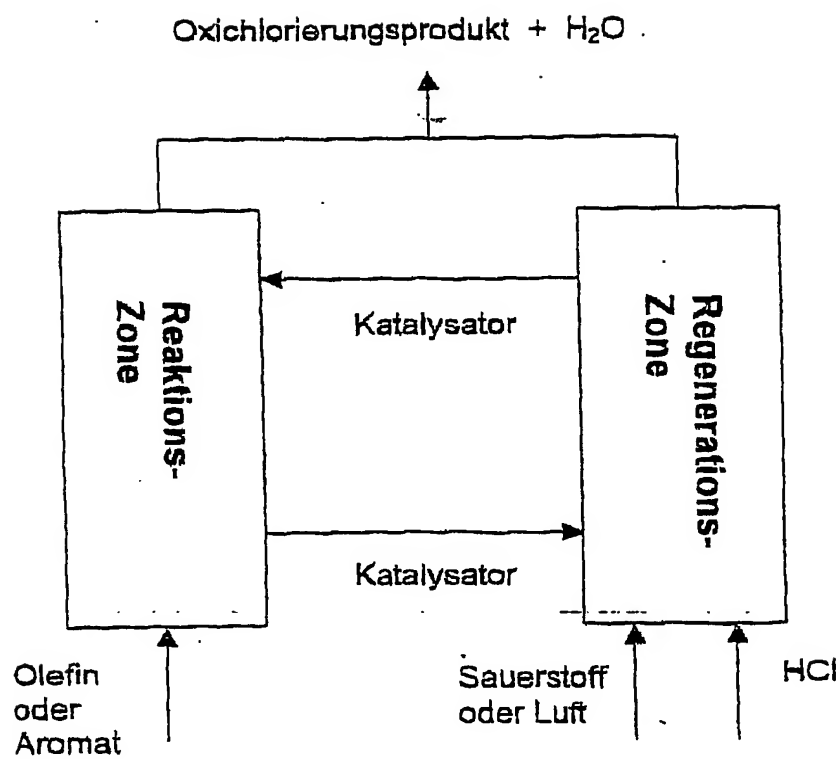


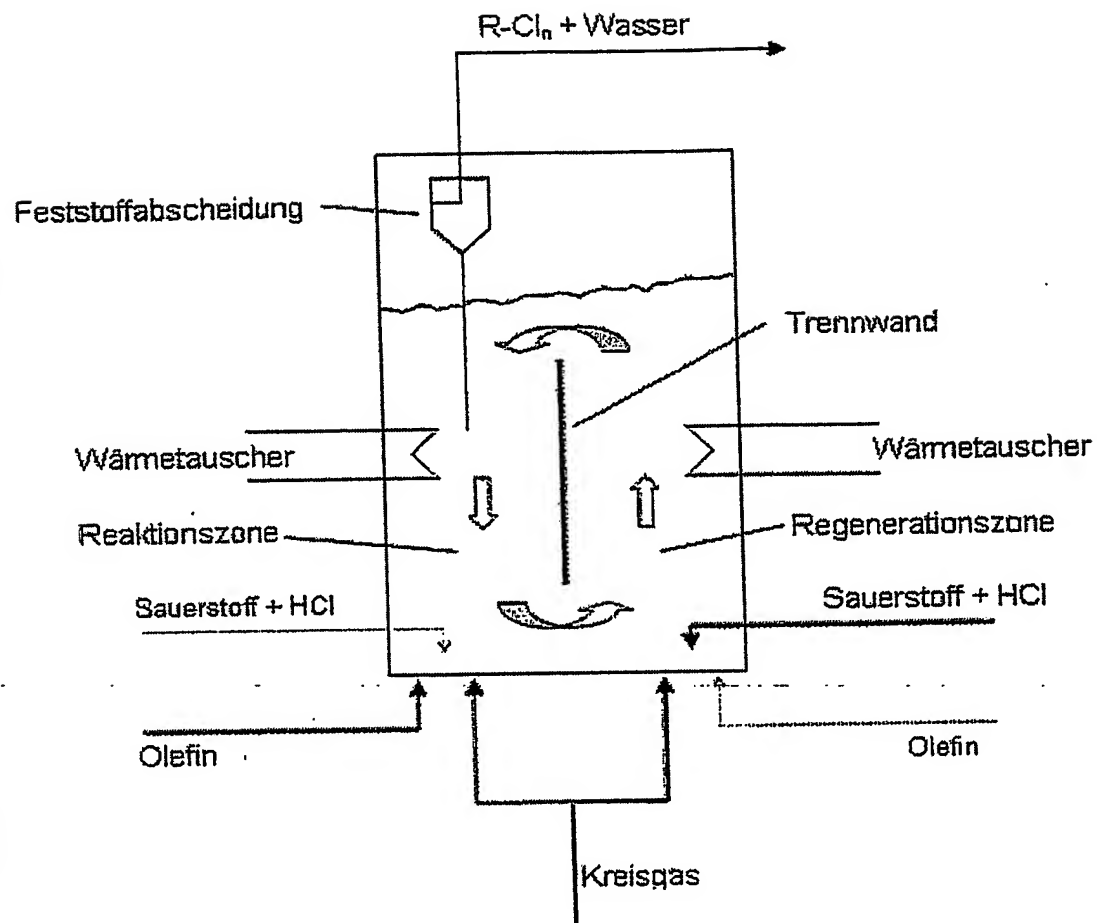
Fig. 1



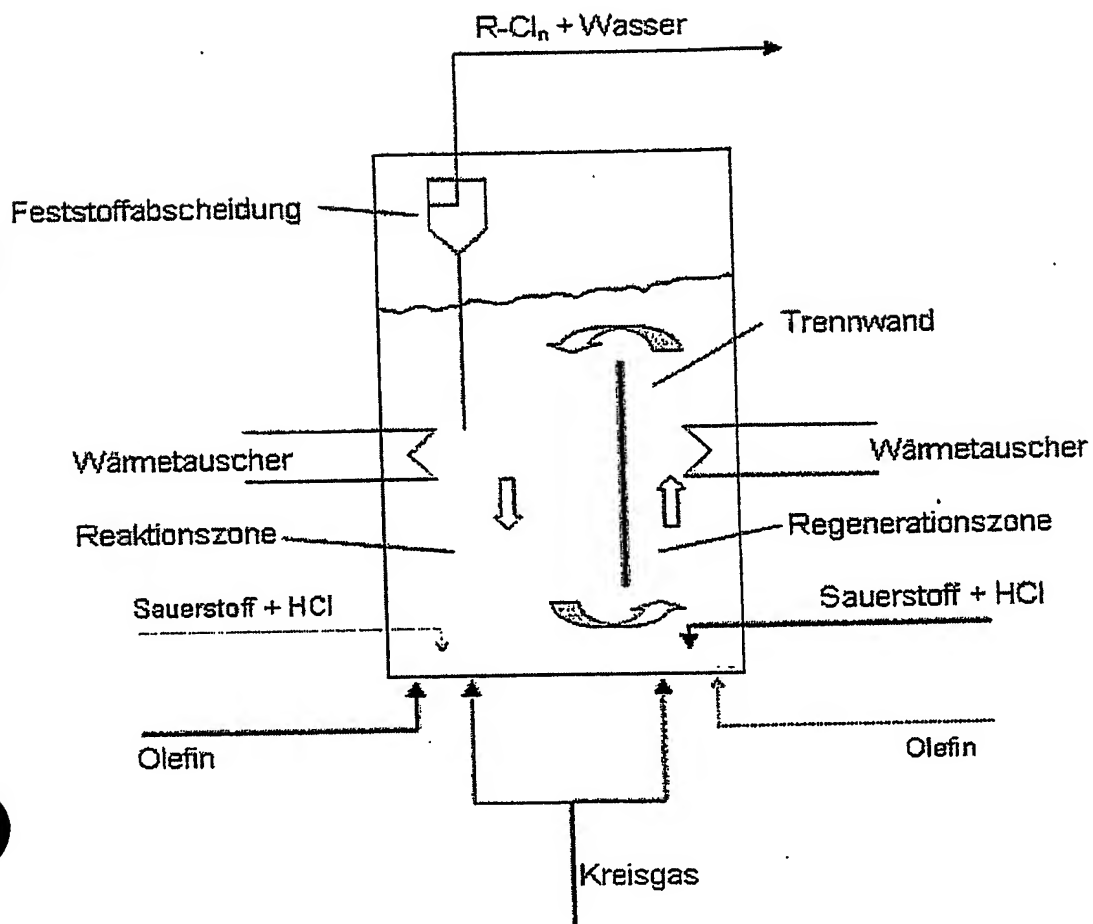
**Fig. 2**



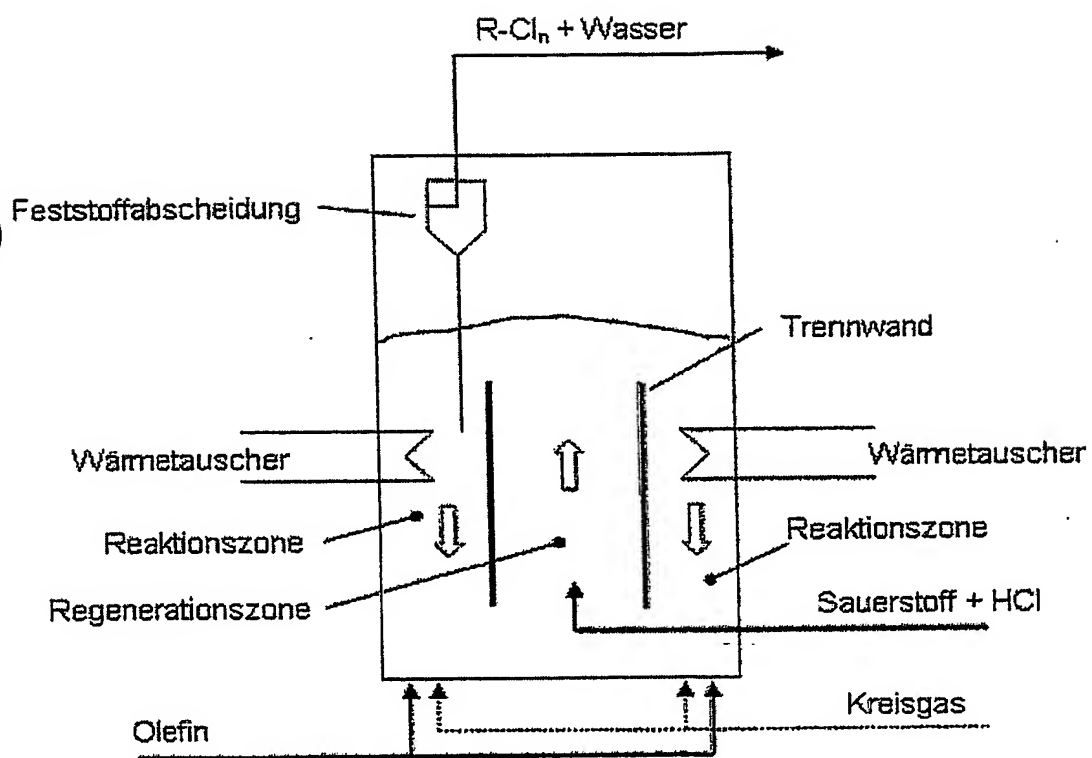
**Fig. 3**



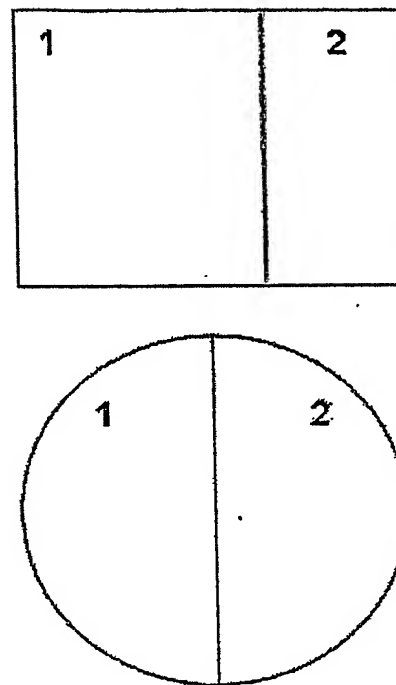
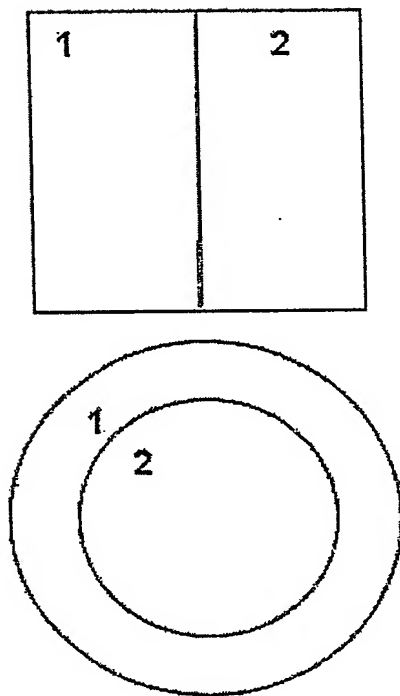
**Fig. 4**



**Fig. 5**



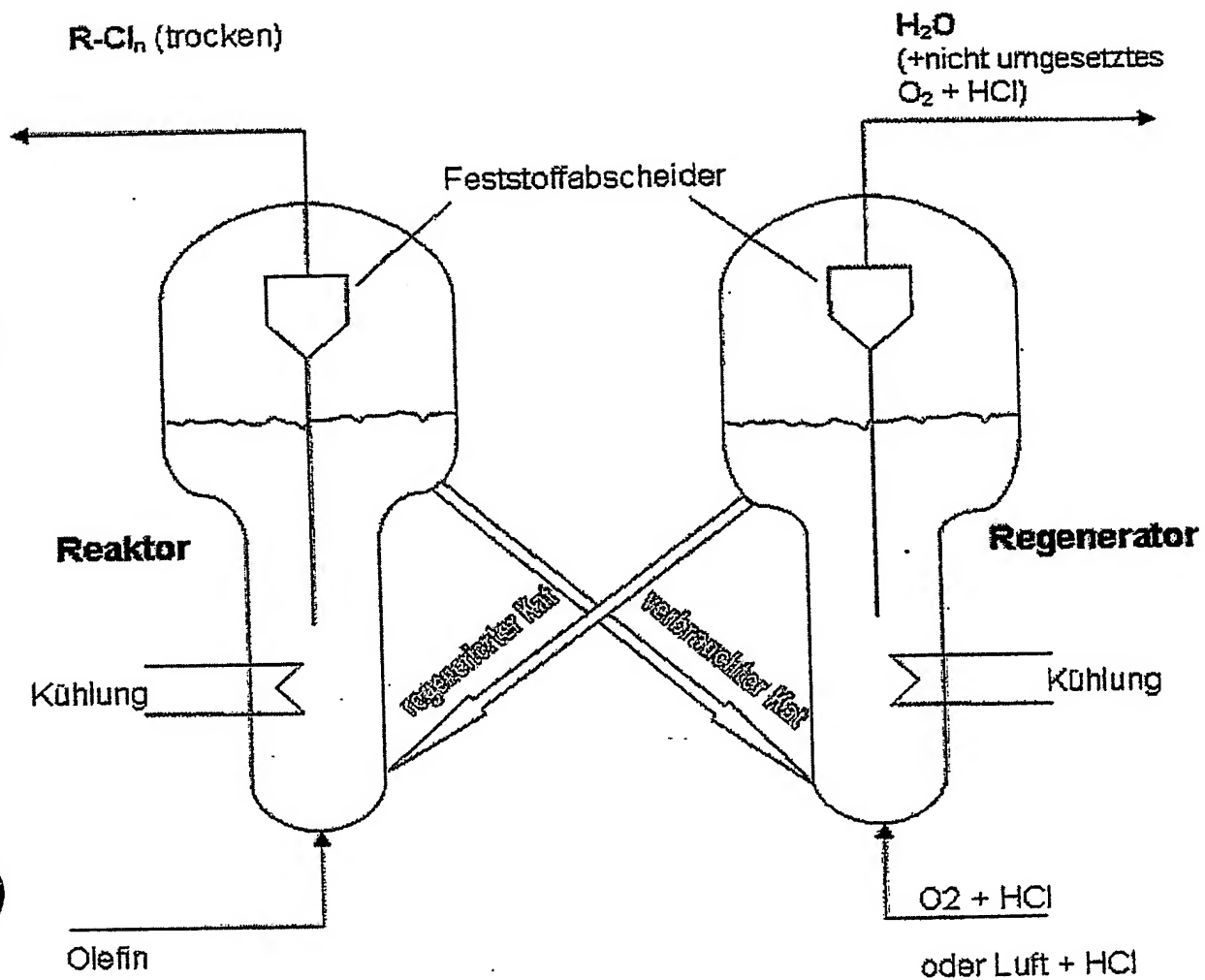
**Fig. 6**



1 Regenerationszone  
2 Reaktionszone

Fig. 7





**Fig. 8**

# Nomogramm Katalysatorumlaufate

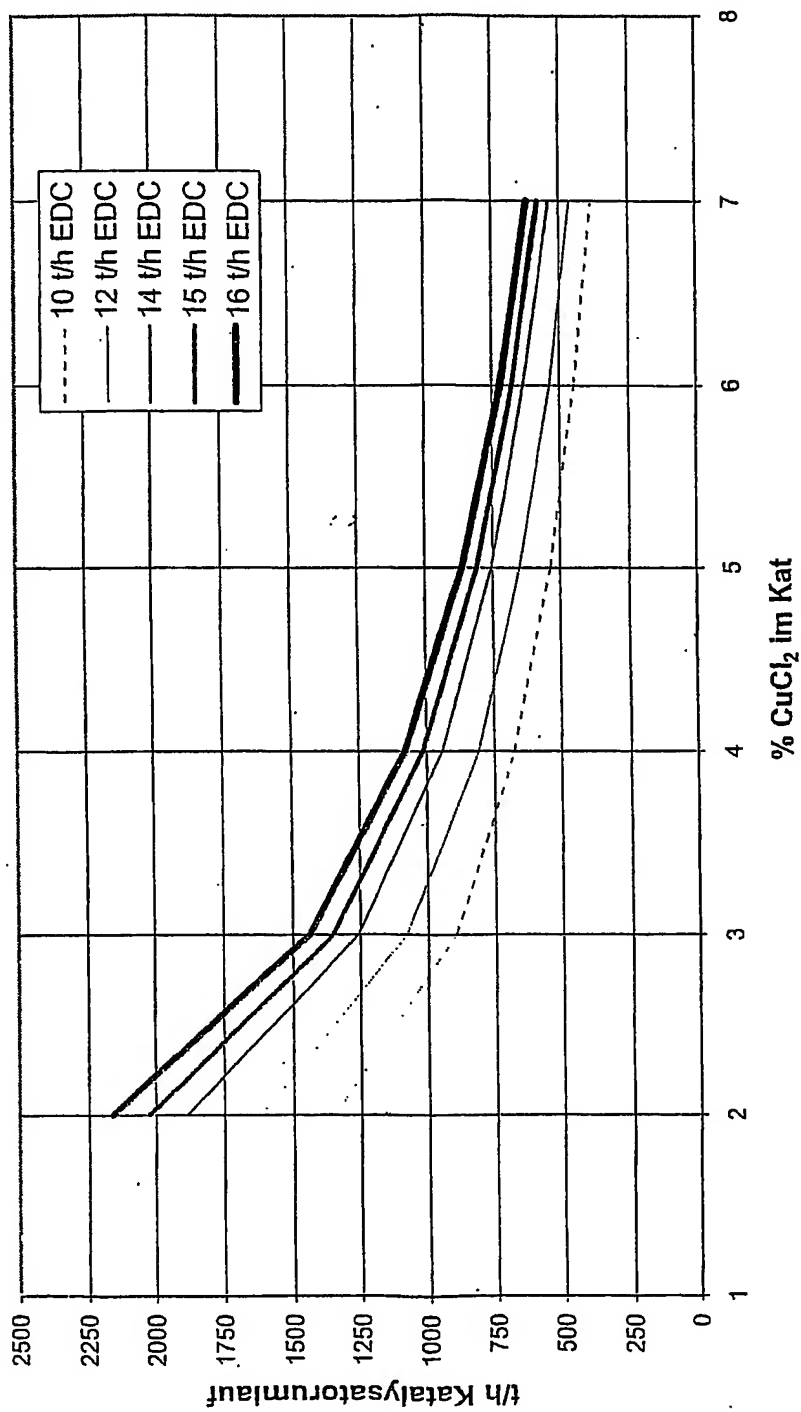


Fig. 9

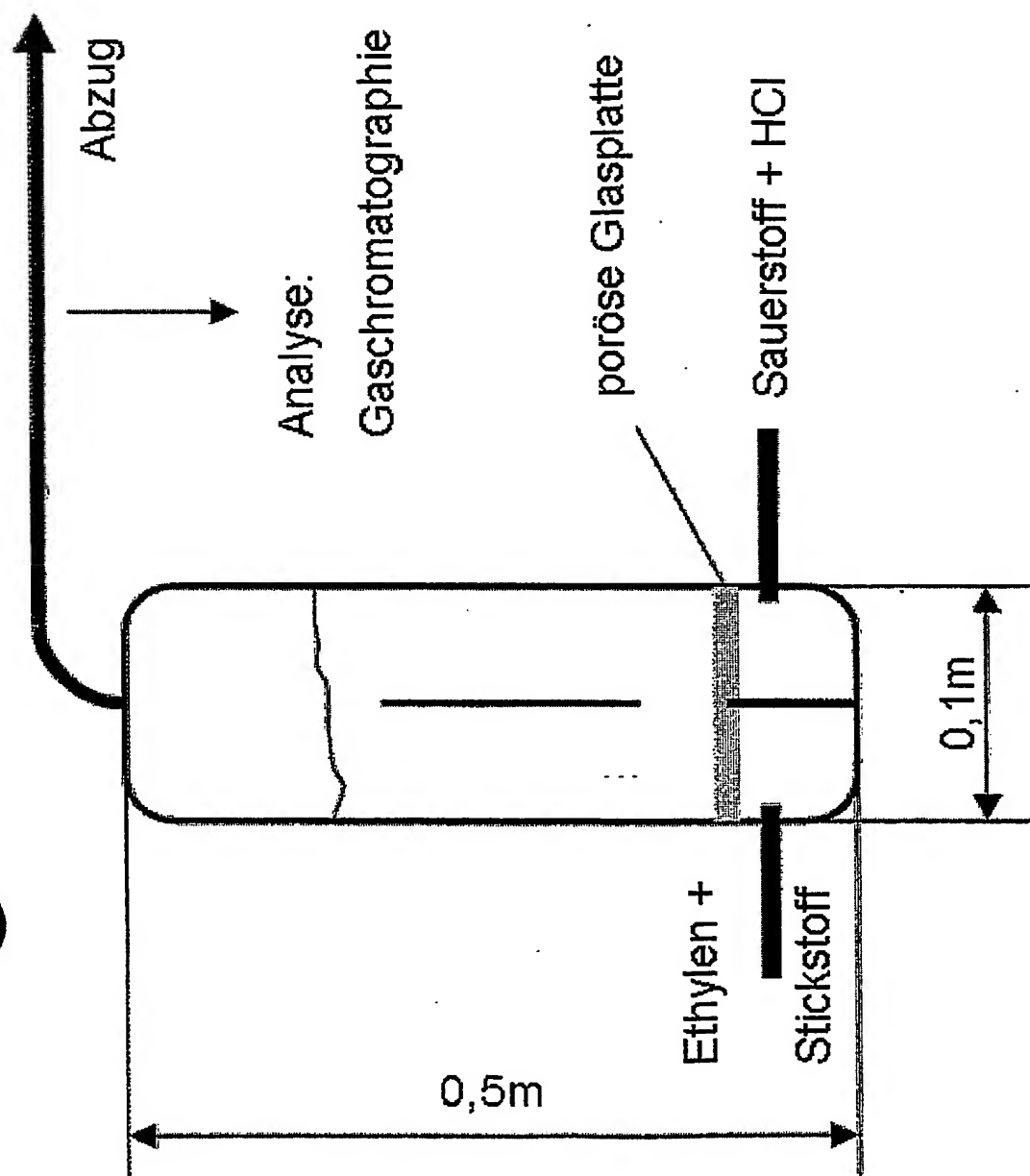


Fig. 10

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☒ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**